УДК 351.510.411

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ИОНИЗАЦИИ В АТМОСФЕРЕ, ИНИЦИИРУЕМЫХ РАДИОАКТИВНЫМИ ВЫБРОСАМИ

В.П. Григорьев, О.В. Томашова

Томский политехнический университет
E-mail: am@am.tpu.ru

Представлена модель ионизации влажного воздуха, инициируемая радиоактивными выбросами в нижние слои атмосферы. Учитываются все основные плазмохимические реакции. Проведен предварительный анализ параметров нарабатываемой плазмы и оценка скорости образования отрицательных ионов.

Введение

Обнаружение и ликвидация радиоактивных загрязнений нижних слоев атмосферы представляет одну из наиболее важных экологических проблем. В связи с этим большое внимание уделяется разработке новых безопасных методов обнаружения радиоактивных выбросов в атмосферу. Перспективными являются методы дистанционного обнаружения, основанные на взаимодействии электромагнитных волн с ионизованными образованиями (облаками), которые формируются в атмосфере, подверженной радиоактивному загрязнению.

Первые экспериментальные и теоретические исследования [1, 2] указали на возможность обнаружения радиоактивных слоев в атмосфере по измерению реакции ионизованного атмосферного воздуха на электромагнитное излучение по радиолокационному отклику. Однако для получения надежных измерений на больших расстояниях (десятки километров) и идентификации радионуклидного состава загрязнений необходимо более полно знать структуру и ионный состав плазменных облаков, образующихся в результате радиоактивного распада. Существующие модели ионизации воздуха при радиоактивных распадах не учитывают основные плазмохимические процессы при атмосферном давлении – образование комплексных ионов [3] как положительных, так и отрицательных. Поскольку рекомбинация комплексных ионов происходит значительно быстрее, чем простых молекулярных ионов, то это существенно изменяет плазменный состав и характеристики плазмы.

Уравнения плазмохимических реакций

Нижние слои атмосферы, которые подвергаются радиоактивным загрязнениям, в основном состоят из молекулярного азота N_2, составляющего 78,09 % от объема сухого воздуха, и молекулярного кислорода O_2 – 20,95 %. Такой состав сохраняется вплоть до высот 90 км. Учитывая это, и выделяя плазмохимические реакции с наиболее высокими постоянными взаимодействия, запишем основные уравнения, описывающие наработку плазмы продуктами радиоактивных распадов радионуклидов во влажной атмосфере:

$$\partial[N_2^+]/\partial t = \nu_1[N_2] - n_e[N_2^+]\alpha_{r1}^{(2)} - [N_2^+]X_4^+(N_2)[N_2]^2 - [O_2^-][N_2^+]\alpha_r^-,$$

$$\partial[N_4^+]/\partial t = [N_2^+]X_4^+(N_2)[N_2]^2 - n_e[N_4^+]\alpha_{r1}^{(4)},$$

$$\partial[O_2^+]/\partial t = \nu_2[O_2] - n_e[O_2^+]\alpha_{r2}^{(2)} - \quad (1)$$

$$-[O_2^+]X_4^+(O_2)[O_2] - [O_2^-][O_2^+]\alpha_r^-, \quad (2)$$

$$\partial[O_4^+]/\partial t = [O_2^+]X_4^+(O_2)[O_2]^2 - n_e[O_4^+]\alpha_{r2}^{(4)},$$

$$\partial[O_2^-]/\partial t = n_e K_{s1}[O_2][N_2] + n_e K_{s2}[O_2]^2 - [O_2^-]X_4^-(O_2)[O_2]^2 \quad (3)$$

$$- [O_2^+][O_2^-]\alpha_r^- - [N_2^+][O_2^-]\alpha_r^- K_{d1}[O_2]\times \quad (4)$$

$$\times[N_2] - K_{d2}[O_2^-][O_2] + K_{s3}[O_2]n_e[H_2O] - K_{d3}[O_2^-][H_2O],$$

$$\partial[H_2O]/\partial t = - n_e[H_2O]K_{дис} - n_e[H_2O]K_{\partial n}^{O^-} - n_e[H_2O]K_{\partial n}^{H^-} - K_4[O^-][H_2O], \quad (5)$$

$$\partial[O^-]/\partial t = n_e[H_2O]K_{\partial n}^{O^-} - K_6 n_e[O^-] - K_4[O^-][H_2O], \quad (6)$$

$$\partial[H^-]/\partial t = n_e[H_2O]K_{\partial n}^{H^-} - K_8 n_e[H^-] - K_7[H^-][O_2] - K_5[H^-][H_2O], \quad (7)$$

$$\partial[O_4^-]/\partial t = [O_2^-]X_4^-(O_2)[O_2]^2 - [O_4^-][N_2^+]\alpha_r^-, \quad (8)$$

$$\partial n_e/\partial t = v`_1[N_2^+] + v_2[O_2^+] - n_e[N_2^+]\alpha_{r1}^{(2)} - n_e[O_2^+]\alpha_{r2}^{(2)} - n_e[N_4^+]\alpha_{r1}^{(4)} - \quad (9)$$

$$- n_e[O_4^+]\alpha_{r2}^{(4)} - n_e K_{s1}[O_2][N_2] - n_e K_{s2}[O_2]^2 + K_{d1}[O_2^-][N_2] + K_{d1}[O_2^-][O_2].$$

Здесь квадратными скобками обозначены концентрации соответствующих частиц.

(10)

n_e – концентрация электронов плазмы и ионизирующих частиц, ν_1,ν_2 – частота ионизации молекул азота и кислорода воздуха [2, 3], $[N_2]=2,1\times 10^{19}$ см$^{-3}$ – плотность молекул азота, $[O_2]=5,6\cdot 10^{18}$ см$^{-3}$ – плотность молекул кислорода.

Постоянные взаимодействия плазмохимических реакций в уравнениях (1–10) описываются выражениями [3–5]:

$K_{s1}=1,6\cdot 10^{-31}$ см^6/с – скорость тройного прилипания электрона к молекулам кислорода с участием молекул азота;

$K_{s2}=1,4\cdot 10^{-29}(0,026/T_e)\exp[-0,052/T_e]$ см^6/с – скорость тройного прилипания электрона с участием двух молекул кислорода;

$K_{d1}=1,9\cdot 10^{-12}(T_g/300)^{3/2}\exp[-4990/T_g]$ см^3/с,

$K_{d2}=2,7\cdot 10^{-10}(T_g/300)^{1/2}\exp[-5590/T_g]$ см^3/с – скорости разрушения отрицательных ионов O_2^-;

$X_4^+(N_2)=5,0\cdot 10^{-29}$ см^6/с, $X_4^+(O_2)=2,5\times 10^{-30}\times (300/T_g)^{0,75}$ см^6/с – скорость конверсии молекулярных ионов N_2^+ и O_2^+ в сложные ионы;

$X_4^-(O_2^-)=0,4\cdot 10^{-30}$ см^6/с – скорость преобразования

молекулярных отрицательных ионов в O_4^-;

$\alpha_{r1}^{(2)} = 2{,}0\cdot10^{-7}(0{,}026/T_e)^{0{,}39}$ см^3/с, $\alpha_{r2}^{(2)} = 2{,}1\cdot10^{-7}(0{,}026/T_e)^{0{,}56}$ см^3/с – скорость диссоциативной рекомбинации ионов N_2^+ и O_2^+;

$\alpha_{r1}(4) = 2{,}0\cdot10^{-6}(0{,}026/T_e)^{0{,}5}$ см^3/с, $\alpha_{r2}^{(4)} = 1{,}4\times \times10^{-7}(0{,}026/T_e)^{0{,}5}$ см^3/с – скорость рекомбинации комплексных ионов N_4^+ и O_4^+;

$\alpha_{r-} \approx 2{,}0\cdot10^{-6}$ см^3/с – коэффициент рекомбинации отрицательных ионов кислорода с положительными ионами N_2^+ и O_2^+;

$K_{дис} \approx (10^{-17}\ldots10^{-18})$ м^3/с – скорость изменения концентрации паров воды за счет процесса распада молекул H_2O;

$K\partial_n^{O^-} = 1{,}3\cdot10^{-16}$ м^3/с, $K_{\partial n}^{H^-} = 5{,}0\cdot10^{-16}$ м^3/с – скорость диссоциативного прилипания электронов к молекулам воды;

$K_{d3} = 1{,}6\cdot10^{-40}$ м^6/с – скорость гибели ионов O_2^- при столкновении с молекулами воды;

$K_{s3} = 1{,}4\cdot10^{-41}$ м^6/с – скорость тройного прилипания электрона к молекулам кислорода с участием молекул воды;

$K_4 = 1{,}4\cdot10^{-15}$ м^3/с, $K_5 = 3{,}8\cdot10^{-15}$ м^3/с – скорости реакции ионно-молекулярной конверсии, ведущей к образованию устойчивого отрицательного иона гидроксила и молекулярного водорода;

$K_6 = 5{,}0\cdot10^{-14}$ м^3/с – скорость гибель ионов O^- в результате их разрушения электронным ударом;

$K_7 = 1{,}2\cdot10^{-15}$ м^3/с – скорость ассоциативного отрыва электрона;

$K_8 = 4{,}0\cdot10^{-15}$ м^3/с – скорость гибели H^- в результате их разрушения электронным ударом;

T_e – температура электронов;

T_g – температура газа.

Нелинейная система уравнений (1–10) описывает наработку основных частиц в плазменном облаке. Плотность нарабатываемых частиц зависит от времени и координат и определяется распределением радиоактивных выбросов в пространстве и времени, их качественным составом и уровнем активности.

Так как скорости плазмохимических процессов и параметры образующейся плазмы (например: проводимость, коэффициенты диффузии и др.) существенно зависят от температуры плазменных электронов, то для полноты дополним систему (1–10) уравнением для T_e. Используя известные уравнения [6] и, в общем случае предполагая наличие внешней электромагнитной волны с амплитудой E_0 и частотой ω, запишем уравнение для T_e в виде:

$$\partial T_e / \partial t = \left(\frac{1}{3}\frac{e^2 E_0^2 \nu_m}{m \chi^2 (\nu_m^2 + \omega^2)}\right) - \aleph_{ek}\nu_m (T_e - T_g) \qquad (11)$$

Здесь $\aleph_{ek}$ – средний коэффициент передачи энергии от плазменных электронов тяжелым частицам, зависящий от T_e и связанный с упругим и неупругим столкновениями, ν_m – эффективная частота столкновений плазменных электронов, равная суммарной частоте упругих ν_i и неупругих ν_1 столкновений.

В широкой области низкотемпературной плазмы в плотном газе ν_m определяется упругими столкновениями плазменных электронов с нейтральными частицами и равна [6]

$$\nu_m \approx \nu_{ea} = 0{,}63\cdot10^{-8}\, N_g\, (T_e/0{,}026)^{1/2},$$

где N_g – концентрация нейтральных частиц.

В сильных электрических полях и условиях, близких к стационарным, для определения T_e удобно использовать эмпирическую зависимость от параметра (E_0/N_g) [7]

$$T_e = 0{,}026\cdot[10^{20}\,(E_0/N_g)]^{0{,}6}, \text{ эВ}. \qquad (12)$$

Поле E_0 берется в В/см, N_g в см$^{-3}$.

Приведенная выше система уравнений совместно с учетом состава и интенсивности радиоактивных выбросов в атмосферу позволяет определять параметры плазмы, включая ее ионный состав, в атмосфере. Решение этой системы уравнений в общем случае требует применения численных методов. Однако для оценки влияния отдельных механизмов взаимодействия на ионный состав плазмы можно использовать некоторые упрощения. В частности, для оценки роли одного из главных взаимодействий – прилипания электронов к нейтральным молекулам кислорода можно рассмотреть сухой воздух и ограничиться уравнением (10) в виде

$$\delta n_e / \delta t = J - \alpha_r n_e^2 - n_e \nu_a + J_d, \qquad (13)$$

где $\nu_s = K_{s2}[O_2]^2$ – частота прилипания низкоэнергетичных электронов в воздухе, J – скорость наработки электронов, α_r – коэффициент рекомбинации электронов с положительными ионами, $J_d = [O_2^-]\times\times(K_{d1}[N_2] + K_{d2}[O_2])$ – удельная скорость отлипания электронов.

В установившемся режиме решение уравнения (13) имеет вид

$$n_e = -\frac{\nu_a}{2\alpha_r} + \left(\frac{\nu_a^2}{4\alpha_r^2} + \frac{J_1}{\alpha_r}\right)^{1/2}, \quad J_1 = J + J_d. \qquad (14)$$

В предельных случаях из (14) получим:

а) $\frac{\nu_a^2}{4\alpha_r^2} \ll \frac{J_1}{\alpha_r}$ – основные потери электронов обусловлены рекомбинацией $n_e \cong \left(\frac{J_1}{\alpha_r}\right)^{1/2}$; (15)

б) $\frac{\nu_a^2}{4\alpha_r^2} \gg \frac{J_1}{\alpha_r}$ – основным процессом гибели электронов является их прилипание к нейтральным частицам. $n_e \cong \frac{J_1}{\nu_a}$. (16)

Для плотности положительных ионов n^+ в установившемся режиме справедлива оценка

$$n^+ = \left(\frac{J}{\alpha_r}\right)^{1/2}. \qquad (17)$$

Учитывая молекулярный состав воздуха при давлении ~10^5 Па в области температур плазменных электронов 1…10 эВ, получим, что частота прилипания электронов ν_s~$3\cdot10^7\ldots2\cdot10^6$ с$^{-1}$, а коэффициент рекомбинации лежит в пределах $\alpha_r \approx \approx (0{,}48\ldots0{,}2)\cdot10^{-7}$ см^3/с.

Отсюда следует, что для существования электронной компоненты плазмы с n_e~10^6 см$^{-3}$ при атмосферном давлении воздуха необходимо, чтобы скорость

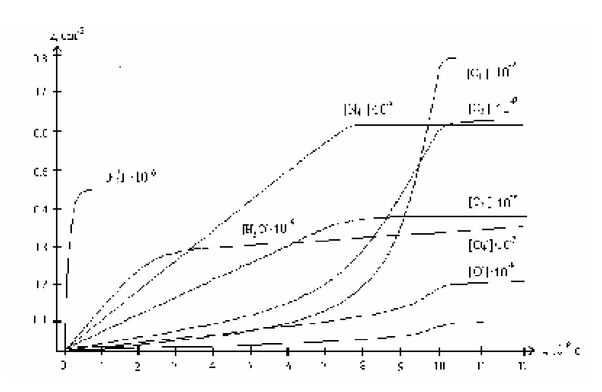


Рисунок. Зависимости концентраций ионов z от времени t при $T_g = 300$ K, $T_e = 1$ эВ

наработки электронов была не меньше $J_1 \sim 10^{12}$ см$^{-3}$с$^{-1}$. В обычных условиях это возможно только при достаточно высоком уровне активности выбросов. При наличии внешнего электрического поля (электромагнитный импульс локатора или дополнительная подсветка) эта задача существенно облегчается, так как в этом случае сильно возрастает скорость реакции разрушения отрицательных ионов кислорода. Так, при $E_0 \sim 10$ кВ/см, что ниже предела пробоя воздуха, $K_{d1} \sim K_{d2} \sim 10^{12}$ см$^{-3}$с$^{-1}$, и равновесие между процессами образования ионов O_2^- и их разрушением стабилизируется при $[O_2^-] \ll n_e$. В результате можно получить плазму с высокой концентрацией электронов.

В общих предположениях на основе уравнений (1–10) были проведены расчеты по ионизации воздуха радиоактивными загрязнениями. Результаты моделирования приведены на рисунке.

Заключение

Представленная в работе модель ионизации воздуха при радиоактивных загрязнениях атмосферы позволяет определить ионный состав и плотность нарабатываемой плазмы в зависимости от состава радионуклидных выбросов в атмосферу.

Естественным развитием данной модели является учет влияния внешнего электромагнитного поля на процессы ионизации и влияние ионизационных процессов на стимулирование конденсации и выпадение осадков с загрязнениями.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Боярчук К.А., Кононов Е.Н., Ляхов Г.А. Радиолокационное обнаружение областей локальной ионизации в приземных слоях атмосферы // Письма в ЖТФ. – 1993. – Т. 19, вып. 6. – С. 67–72.
2. Диденко А.Н. Усов Ю.П., Юшков Ю.Г., Григорьев В.П. и др. Использование импульсных радиолокаторов СВЧ диапазона для контроля радиоактивных выбросов в атмосферу // Атомная энергия. – 1996. – Т. 80, вып. 1. – С. 47–53.
3. Смирнов Б.М. Ионы и возбужденные атомы в плазме. – М.: Атомиздат, 1974. – 456 с.
4. Александров Н.Л. Трехчастичное прилипание электронов к молекуле // Успехи физических наук. – 1988. – Т. 154, вып. 2. – С. 177–122.
5. Елецкий А.В., Смирнов Б.М. Диссоциативная рекомбинация электрона и молекулярного иона // Успехи физических наук. – 1982. – Т. 136, вып. 1. – С. 25.
6. Гинзбург В.Л. Распространение электромагнитных волн в плазме. – М.: Наука, 1967. – 684 с.

УДК 541.123.012:546.79:661.879.402